

PRODUCTION OF SILICON CARBIDE SINTERED MATERIAL

Patent Number: JP7126070
Publication date: 1995-05-16
Inventor(s): TATENO SHUICHI; others: 02
Applicant(s): KYOCERA CORP
Requested Patent: ☐ JP7126070
Application Number: JP19930271885 19931029
Priority Number(s):
IPC Classification: C04B35/565; C04B35/645
EC Classification:
Equivalents:

Abstract

PURPOSE:To produce a high-density sintered material by forming a preliminary sintered material so that the surface layer may have a higher density than that of the inside and that the inside and the surface layer may have \geq a specified relative density and applying an isostatic hot pressing treatment thereto.

CONSTITUTION:A specific amount of a sintering assistant such as powdery B₄C is admixed with a powdery alpha- or beta-type SiC having about 0.1 to 3.0 μ m average particle diameter and a forming binder is applied to the resultant mixture to form a specific shape and this process is repeated two or more times. The obtained shaped material is then calcined in a non-oxidative atmosphere at about 1900 to 2200 deg.C for about 0.5 to 4hr to prepare a preliminary sintered material having \geq 90% relative density of the inside and \geq 96% relative density of the surface layer. The resultant preliminary sintered material is then sintered in a non-oxidative atmosphere under conditions of about 500 to 2000atm and about 1600 to 2000 deg.C according to the isostatic hot pressing method, thus producing the objective dense SiC sintered material having \geq about 99% relative density.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-126070

(43) 公開日 平成7年(1995)5月16日

(51) Int. Cl. ⁴	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 4 B 35/565 35/645			C 0 4 B 35/ 56 35/ 64	1 0 1 S 3 0 2 B

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平5-271885

(22) 出願日 平成5年(1993)10月29日

(71) 出願人 000006633

京セラ株式会社
京都府京都市山科区東野北井ノ上町5番地
の22

(72) 発明者 立野 周一

鹿児島県国分市山下町1番4号 京セラ株
式会社総合研究所内

(72) 発明者 寺園 正喜

鹿児島県国分市山下町1番4号 京セラ株
式会社総合研究所内

(72) 発明者 北澤 謙治

鹿児島県国分市山下町1番4号 京セラ株
式会社総合研究所内

(54) 【発明の名称】 炭化珪素質焼結体の製造方法

(57) 【要約】

【構成】炭化珪素粉末に焼結助剤を添加した混合粉末を所定の形状に成形した後、成形体を非酸化性雰囲気中で焼成して予備焼結体を得、さらに予備焼結体を熱間静水圧焼成するにあたり、混合粉末に対して静水圧を印加し成形する工程を少なくとも2回以上繰り返した後、その成形体を非酸化性雰囲気中で焼成することにより予備焼結体の表層部の相対密度が内部よりも高く、内部密度が90%以上、表層部密度が96%以上の焼結体を得た後、HIP焼成して高密度焼結体を得る。

【効果】HIP焼成により高密度の焼結体を得るために必要な予備焼結体密度より内部密度が低い焼結体であっても、高密度の焼結体を得ることができる。よって、大型形状品の作製において、容易に高密度で均質な焼結体を得ることができる。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】炭化珪素粉末に焼結助剤を添加した混合粉末を所定の形状に成形した後、該成形体を非酸化性雰囲気中で焼成して予備焼結体を得、さらに該予備焼結体を熱間静水圧焼成する炭化珪素質焼結体の製造方法において、前記予備焼結体の表層部の密度が内部よりも高く、内部の相対密度が 90%以上、表層部の相対密度が 96%以上であることを特徴とする炭化珪素質焼結体の製造方法。

【請求項 2】前記予備焼結体が、前記混合粉末に対して静水圧を印加し成形する工程を少なくとも 2 回以上繰り返した後、その成形体を非酸化性雰囲気中で焼成することにより得られたものであることを特徴とする炭化珪素質焼結体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、炭化珪素質焼結体の製造方法に関し、詳細には大型形状の焼結体を製造するに適した製造方法に関する。

【0002】

【従来技術】炭化珪素質焼結体は、機械的強度、高温強度、硬度等に優れたセラミック材料として注目され、金属に代わる各種の機械用部品への応用が進められている。

【0003】このような炭化珪素質焼結体は、一般には焼結助剤として炭素あるいはホウ素を添加し固相焼結するか、あるいは Al_2O_3 等の酸化物を添加し液相焼結するなどの手法により高密度化が図られている。中でも高密度焼結体を得る方法として、最近では熱間静水圧焼成法（HIP 法）が知られている。この方法は、ホット

【0004】

【発明が解決しようとする問題点】しかしながら、上記 HIP 法では、予備焼結体として 95%以上以上の相対密度を有していなければ、高圧ガスによる圧力が焼結体にかからず、さらに高密度化することができない。このような高密度の予備焼結体は、小型形状品の場合には従来法により比較的容易に作製することができる。

【0005】しかしながら、大型形状品の場合には、内部から表面に至り高密度の焼結体を得ることは非常に困難であるため、HIP 法を適用しても高密度体を得ることができない。

【0006】従って、本発明の目的は、大型形状品であっても熱間静水圧焼成により高密度の焼結体を得ることのできる炭化珪素質焼結体の製造方法を提供するにある。

【0007】

【問題点を解決するための手段】本発明者らは、大型形

状品の予備焼結体の密度を高めるための方法について検討したところ、静水圧が印加されるには、かならずしも予備焼結体全体が高密度である必要がなく、焼結体表面付近のみが高密度であれば HIP 処理により高密度化が達成されることを見だし、本発明に至った。

【0008】即ち、本発明の炭化珪素質焼結体の製造方法は、炭化珪素粉末に焼結助剤を添加した混合粉末を所定の形状に成形した後、その成形体を非酸化性雰囲気中で焼成して予備焼結体を得、さらに該予備焼結体を熱間静水圧焼成するに当たり、予備焼結体として、表層部の密度が内部よりも高く、内部の相対密度が 90%以上、表層部の相対密度が 96%以上であることを特徴とするもので、さらには、前記予備焼結体が、混合粉末に対して静水圧を印加し成形する工程を少なくとも 2 回以上繰り返した後、その成形体を非酸化性雰囲気中で焼成することにより得られたものであることを特徴とするのである。

【0009】以下、本発明を詳述する。本発明の製造方法によれば、まず、原料粉末として用いられる炭化珪素粉末としては、 α 型、 β 型のいずれでもよく、平均粒径が 0.1~3.0 μm 程度のものが好適である。また、この炭化珪素粉末に添加される焼結助剤としては、公知の助剤が使用でき、例えば炭素粉末や B、B₂、C 等のホウ素化合物、 Al 、Be、 Al_2O_3 、 Y_2O_3 等の粉末が使用できる。これらの焼結助剤は、助剤の種類により適宜その量を決定され、具体的には、特開昭 54-144411 号、特開昭 57-42577 号、特開昭 55-116667 号等に記載されるような比率で添加すればよい。

【0010】このように炭化珪素粉末と焼結助剤とを上記のように混合した後、成形用バインダー等を添加した後、所定の形状に成形する。セラミックスの成形手段としては、金型プレス成形、冷間静水圧プレス成形、押出し成形、射出成形などが知られているが、本発明によれば、この中でも冷間静水圧プレスを用いる。この冷間静水圧プレスは、混合粉末を変形可能な容器内に入れて水又は油を圧力媒体として 300~5000 kg/cm^2 の圧力を印加し成形するものである。さらに、本発明によれば、このような静水圧プレス成形を 2 回以上繰り返すことが重要である。具体的には、前記圧力を付与して成形後、圧力を解除した後、再度圧力を付与した圧力を解除し、場合によってはこれを繰り返す。なお、静水圧プレスを行う前に、金型プレスなどの他の成形方法により所望の形状に成形しておいてもよい。

【0011】上記のように圧力付与—解除を繰り返す行くと、成形体の密度は全体的に徐々に高くなるが、特に成形体の表層部における密度が高くなり、最終的には表層部と内部とで密度差の存在する成形体を得られる。得られる成形体の相対密度としては、内部が 60%以上であることが望ましく、表層部はこれより高く、70%以

上であることがよい。

【0012】本発明によれば、上記のようにして得られた成形体を予備焼成することにより内部の相対密度が90%以上で、表層部の相対密度が96%以上の焼結体を得ることが重要である。このような密度を有する焼結体を得るには、上記成形体を真空中やAr、N₂等の非酸化性雰囲気中で1900～2200℃で0.5～4時間程度焼成することにより得ることができる。

【0013】次に、上記予備焼結体をアルゴンガスを圧力媒体として500～2000気圧の高圧下で1600

【0014】なお、上記製造方法において予備焼成温度および熱間静水圧焼成温度を上記の範囲に限定したのは、温度が規定した条件より低いと所望の密度が得られず、逆に高すぎると炭化珪素の分解が生じて表面が荒れ特性も劣化するためである。

【0015】

【作用】本発明の製造方法によれば、成形方法として冷間静水圧プレス法を用いて圧力付与－圧力解除を繰り返す行くと、成形体の全体的密度は回数を重ねることにより徐々に高くなるが、ある一定まで密度が高められるとそれ以上密度が高くなならない。しかしながら、この時の成形体の表層部と内部とで表層部の方が内部よりも高くなるという現象が生じる。このような表層部の密度が高い成形体を焼成すると、表層部の方が緻密質な焼結体得られる。

【0016】予備焼成－熱間静水圧焼成により緻密化を図る場合、予備焼結体として少なくとも95%以上の相対密度が必要であるが、大型品では、このような高密度の予備焼結体を作製することは難しい。

*

*【0017】そこで、本発明によれば、前記の成形－予備焼成により表層部のみ密度の高い焼結体を得ることにより、大型品であっても熱間静水圧焼成により高密度の焼結体を得ることができる。

【0018】よって、大型形状品について、必ずしも全体としての相対密度が95%以上の予備焼結体を作製する必要がなく、表層部のみ密度が高ければ高圧が焼結体全体に付与されて内部まで高密度で均質な焼結体を得ることができる。

【0019】

【実施例】β型SiC粉末に、B、C粉末0.4重量%と炭素粉末2重量%を添加し、ボールミルにより24時間混合した後、この混合粉末に結合材としてフェノール樹脂を添加し0.1kg/cm²の圧力で一軸プレスした後、静水圧プレスを行ない直径60mm、厚さ30mmの成形体を得た。この時、静水圧プレスは2000kg/cm²の圧力により1～4回行った。その後、上記成形体をアルゴン中、2000℃で3時間予備焼成した後、196MPaのアルゴン中、1950℃で1時間熱間静水圧焼成した。

【0020】上記工程中、成形体、予備焼結体および最終焼結体の密度を測定した。密度の測定は、硬度と密度が直線的な関係にあることから検量線を作成し、成形体の表層部から内部にわたり1mm間隔で硬度測定を行い、測定された硬度を作成した検量線により相対密度に換算した。また、焼結体の特性としては、JIS R1601に基づく試験片を最終焼結体より切り出し3点曲げ強度を測定した。結果は表1に示した。

【0021】

【表1】

試料 No.	静水圧 プレス 回数	成形体 密度 (%)		予備焼結体 密度 (%)		HIP 後の 焼結体内部密度 (%)	室温 強度 (MPa)
		内部	表層部	内部	表層部		
* 1	1	66	67	88	94.6	95.8	381
* 2	2	67	69	90	95.0	96.0	417
3	3	69	73	91	98.0	99.4	511
4	4	70	76	92	98.0	99.2	545

*印は本発明の範囲外の試料を示す。

【0022】表1の結果によれば、予備焼結体の表層部の相対密度が96%に達していない試料No.1, 2ではいずれも最終焼結体において高い高密度化が達成されないのに対して、本発明に基づき作製された予備焼結体表層部の相対密度が96%以上の焼結体は、最終焼結体において内部まで十分に緻密化しており、比較例に比べて強度も高いものであった。

【0023】

【発明の効果】以上詳述したように、本発明の製造方法によれば、HIP焼成により高密度の焼結体を得るために必要な予備焼結体密度より内部密度が低い焼結体であっても、高密度の焼結体を得ることができる。よって、大型形状品の作製において、容易に高密度で均質な焼結体を得ることができる。